

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

RECEIVED

23 SEP 2004

WIPO PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts PCT1804-10/mmb	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/04889	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 09.05.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 14.06.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C03B23/207		
Anmelder GANTENBRINK, Rudolf		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.



2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

- ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 6 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  12.01.2004	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  21.09.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde   Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter  Creux, S Tel. +31 70 340-3027 

**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-5 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-8 eingegangen am 05.07.2004 mit Schreiben vom 05.07.2004

**Zeichnungen, Blätter**

1/4-4/4 in der ursprünglich eingereichten Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung,       Seiten:
- ☐ Ansprüche,        Nr.:
- ☐ Zeichnungen,     Blatt:

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/04889

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

## V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- |                                |  |
|--------------------------------|--|
| 1. Feststellung                |  |
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-8<br>Nein: Ansprüche -   |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche 1-6,8<br>Nein: Ansprüche 7 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-8<br>Nein: Ansprüche: - |

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

Es wird auf das folgende Dokument verwiesen:

D1: GB-A-221107

1. Der Gegenstand des **Anspruchs 1** erfüllt die Erfordernisse des Artikels 33(1)-(3) PCT in Bezug auf Neuheit und erfinderische Tätigkeit.
  - 1.1. Dokument D1, das als nächstliegender Stand der Technik angesehen wird, offenbart (siehe Abbildungen 1-2) ein Verfahren zum Verschließen eines Hohlkörpers aus Glas, von dem sich der Gegenstand des Anspruchs 1 dadurch unterscheidet, dass der Glasstopfen einen radialen abstehenden Flansch aufweist, dessen Aussendurchmesser dem Aussendurchmesser des Einfüllstutzens entspricht, und der auf der dem Einfüllstutzen zugewandten Seite eine umlaufende Zentrierschräge aufweist.
  - 1.2. Die mit der vorliegenden Erfindung zu lösende Aufgabe kann somit darin gesehen werden, dass der Verschlussstopfen nicht in den Hohlkörper fallen kann, und dass die in den Hohlkörper hineinragende Länge des Verschlussstopfens für jeden Hohlkörper genau eingestellt wird.
  - 1.3. Diese Aufgabe ist aus Dokument D1 weder bekannt noch offensichtlich. Auch wenn der Fachmann auf dieses Problem gestossen wäre, wäre er nicht auf die Idee gekommen, das Verfahren gemäss D1 mit einem Flansch zu ändern.
2. Die **Ansprüche 2-6** sind vom Anspruch 1 abhängig und erfüllen damit ebenfalls die Erfordernisse des PCT in Bezug auf Neuheit und erfinderische Tätigkeit.
3. Der Gegenstand des **Anspruchs 7** erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1), (3) PCT in Bezug auf erfinderische Tätigkeit.
  - 3.1. Dokument D1, das als nächstliegender Stand der Technik angesehen wird, offenbart (siehe Abbildungen 1-2) einen gefüllten Hohlkörper aus Glas, von dem sich der Gegenstand des Anspruchs 7 dadurch unterscheidet, dass die Wandstärke des

hohlen Verschlussstopfens kleiner als die Wandstärke des Einfüllstutzens ist.

- 3.2. Dieses Merkmal ist nur eine geringfügige bauliche Änderung des Holkörpers, die zu einem leichten, kostengünstigen Körper führt. Die damit erreichten Vorteile sind ohne weiteres im voraus zu übersehen.
4. Der Gegenstand des **Anspruchs 8** erfüllt die Erfordernisse des Artikels 33(1)-(3) PCT in bezug auf Neuheit und erfinderische Tätigkeit.

Die Argumentation des Absatzes 1.1-1.3. oben gilt entsprechend wieder, wobei der Gegenstand des Anspruchs 8 sich von D1 dadurch unterscheidet, dass der Glasstopfen einen radialen abstehenden Flansch aufweist, dessen Aussendurchmesser dem Aussendurchmesser des Einfüllstutzens entspricht.

5. Die **Ansprüche 1-8** erfüllen die Erfordernisse des Artikels 33(4) PCT, da das Verfahren und die Produkte im Bereich der Weinflaschen verwendbar sind.

25 06. 2004

BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS

(72)

[0014] FIGS. 1(a) and 1(b) are diagrammatic illustrations showing the basic two-cycle scheme according to one embodiment of the invention.

[0015] FIG. 2 is a diagrammatic illustration showing a two-cycle scheme with heat exchange of the gases according to one embodiment of the invention.

DETAILED DESCRIPTION OF THE INVENTION

[0016] The general methods of synthesis gas formation, such as catalytic partial oxidation, autothermal reforming and steam reforming are well known in the art. In the present invention, a new method for making synthesis gas using steam reforming chemistry in a cyclic, packed-bed operation is presented. Thus, one step of the cycle includes combustion in the bed to raise the temperature to an elevated level, and a second step reforms hydrocarbon with steam and optionally CO<sub>2</sub> using the heat stored within the bed.

[0017] Figure 1 details one embodiment of the process for pressure swing reforming. The scheme is described in terms of the use of two zones, a first zone, or reforming zone (1), called a swing bed reformer, and a second zone, or recuperating zone, called a synthesis gas heat recuperator (7). However, this process may be carried out sufficiently in a single bed containing two distinct zones, a reforming zone and a recuperating zone. The beds of both zones will include packing material, while the reforming bed of reforming zone (1) will include catalyst for steam reforming and optionally combustion.

[0018] Figure 1(a) illustrates the reforming step of the present invention. At the beginning of the cycle, the reforming zone (1) is at an elevated temperature and the recuperating zone (7) is at a lower temperature than the reforming zone. The hydrocarbon-containing feed (15) is introduced at a

temperature in the range between about 20°C to 600°C and preferably between about 250°C to 450°C, to a first end (3) of the reforming zone (1) along with steam and optionally CO<sub>2</sub>. This stream picks up heat from the bed and is converted over the catalyst and heat to synthesis gas. As this step proceeds, a temperature profile (23) is created based on the heat transfer properties of the system. At properly chosen conditions, this profile is relatively sharp and will move across the reforming zone (1) as the step proceeds.

[0019]        Synthesis gas exits the reforming bed of reforming zone (1) through a second end (5) at an elevated temperature and passes through the recuperating zone (7), entering through a first end (11) and exiting at a second end (9). The recuperating zone (7) is initially at a lower temperature than the reforming zone (1). As the synthesis gas passes through the recuperating zone (7), the synthesis gas is cooled to the temperature of the zone substantially at the second end (9), which is approximately the same temperature of the hydrocarbon-containing feed, in the range of from about 20°C to 600°C. As the synthesis gas is cooled in the recuperating zone (7), a temperature profile (24) is created and moves across the recuperating zone (7) during this step. In one embodiment of the present invention, the first step of the cycle ends when temperature breakthrough begins to occur at a second end (9) of the recuperating zone (7).

[0020]        At the point between steps, the temperature gradient has moved substantially across the reforming zone (1) and into the recuperating zone (7). The zones are sized so that the gradients move across both in comparable time during the above reforming step. The recuperating zone (7) is now at the high temperature and the reforming zone (1) is at low temperature, except for the temperature profile that exists near the exits of the respective zones.

[0021] After the synthesis gas (17) is collected at the second end (9) of the recuperating zone (7), the regeneration step begins. In one embodiment, the regeneration step proceeds in two substeps. First, a non-combusting gas (19), is introduced into the second end (9) of the recuperating zone (7) in the opposite flow direction of the reforming flow. The inlet temperature of this gas will determine the temperature of the recuperating zone substantially at the second end (9) at the end of this step. Thus, it will be equal, or substantially equal to the initial outlet temperature of the synthesis gas of reforming. Non-combusting gas includes steam, air, fluegas, re-circulated inert gas, hydrogen- or hydrocarbon-containing streams, or any gas that does not contain both fuel and oxidant. This gas (19) is heated by the high ambient temperature of the bed of recuperating zone (7), enters the second end of the reforming zone (5) and carries this heat into the reforming zone (1). Again, temperature profiles (26 and 27) are created based on flow and bed conditions, and these profiles move across the zones in the opposite direction from the reforming step to essentially move enthalpy from the recuperating zone (7) to the reforming zone (1). However, the heat stored in the recuperating zone (7) is derived only from the sensible heat of cooling the synthesis gas, while the heat to be replaced in the reforming zone (1) includes both the sensible heat of heating the hydrocarbon/steam and optional carbon dioxide mixture (15) and the endothermic heat of reforming. Thus, this first substep will remove heat from the recuperating zone (7) before the reforming zone (1) is completely filled with heat, and will leave the temperature gradient (27) only partially across the reforming zone (1).

[0022] In another embodiment, this first substep is eliminated and regeneration begins with the second substep.

[0023] In the second substep of regeneration, an oxygen-containing gas (19) and fuel are introduced into the second end of the recuperating zone (9). This mixture flows across the recuperating zone (7) and combusts substantially at the interface of the two zones (13). It is important that the combustion occur



EPO - DG 1  
25 06. 2004

(72)

CLAIMS:

1. A cyclic reforming and re-heating process comprising:

(a) reforming a hydrocarbon by introducing at least a portion of said hydrocarbon along with steam and optionally CO<sub>2</sub> at a space velocity of at least 500 hr<sup>-1</sup>, through a first end of a first zone containing bed packing materials and catalyst, wherein the inlet temperature of said hydrocarbon, steam and optional CO<sub>2</sub> is in the range of 20°C to 600°C;

(b) passing at least a portion of the product of step (a) to a second zone containing bed packing materials, and transferring the sensible heat from the product to the packing materials;

(c) removing substantially all of the product from said second zone;

(d) introducing an oxygen-containing gas into a second end of said second zone; and

(e) contacting said oxygen-containing gas with a fuel and combusting said gas and fuel within said zones,

thereby re-heating said first zone to reforming temperatures to have a high reforming temperature in the reforming zone in the range of 700°C to 2000°C, and creating a fluegas which exits through the first end of said first zone,

wherein the process has a characteristic  $\Delta T_{HT}$  in the range of from 0.1°C to 500°C.

2. The process of claim 1, wherein the combustion of said fuel with said oxygen-containing gas occurs at or substantially at an interface between said first and second zones.
3. The process of claim 1, wherein a non-combusting gas is introduced into the second end of said second zone either after step (c) or directly after step (e) and flows across said second zone, thereby transferring heat from said second zone to said first zone.
4. The process of claim 1 or 2, wherein the reforming of a hydrocarbon is carried out at a higher pressure than regenerating the heat of said first zone.
5. The process of claim 1, wherein the catalyst is selected from the group consisting of noble metal components, Group VIII metal components, Ag, Ce, Cu, La, MO, Mg, Sn, Ti, Y, and Zn.
6. The process of claim 1, wherein the packing materials of said first zone or said second zone or both are composed of a material selected from the group consisting of magnesium aluminum silicates, aluminum silicate clays, mullite, alumina, silica-alumina, zirconia, and mixtures thereof.
7. The process of claim 1, wherein the inlet temperature of the oxygen-containing gas is in the range of 20°C to 600°C.
8. The process of claim 1, wherein the hydrocarbon, steam and optional CO<sub>2</sub> feed is heat exchanged with reforming products.

9. The process of claim 1, wherein the oxygen-containing gas is heat exchanged against the exiting fluegas.

10. The process of claim 1, including:

measuring the temperature at or substantially at the interface between said first and second zones and, upon reaching a pre-determined first temperature, the oxygen- containing gas is introduced to said second zone; and

measuring the temperature at or substantially at the first end of said first zone and, upon reaching a pre-determined second temperature, the hydrocarbon, steam and optional CO<sub>2</sub> feed is introduced to said first end of said first zone.

11. The process of claim 1, including:

measuring the composition of the reforming product in step (c) and, upon reaching a pre-determined composition, the steps (a,b,c) are ended; and

measuring the temperature at or substantially at the first end of said first zone and, upon reaching a pre-determined second temperature, the reforming and recovery steps (a,b,c) are begun.